

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

XP-002131293

AN - 1997-518624 [48]

AP - JP19960049673 19960307 US19970813172 19970307

CPY - TANI

- WATA-I

DC - L03 X16

FS - CPI;EPI

IC - C23C30/00 ; H01M8/02 ; H01M8/04

IN - WATANABE M

MC - L03-E04

- X16-C09 X16-E06A X16-F

PA - (TANI) TANAKA KIKINZOKU KOGYO KK

- (WATA-I) WATANABE M

PN - JP9245819 A 19970919 DW199748 H01M8/02 008pp

- US5846668 A 19981208 DW199905 H01M8/04 000pp

PR - JP19960049673 19960307; US19970813172 19970307

XA - C1997-165363

XIC - C23C-030/00 ; H01M-008/02 ; H01M-008/04

XP - N1997-431746

AB - J09245819 The battery has an anode reaction gas supply groove and a cathode reaction gas supply groove formed in a thin metal film like conductive resin plate. A separator plate (6A,6C) is laminated between the anode and the cathode in a parallel manner.

- ADVANTAGE - Enables efficient cooling of anode or cathode. Aims at miniaturization and simplification of battery structure.

- (Dwg.1/8)

IW - FUEL CELL SEPARATE POSITION PARALLEL ANODE CATHODE

IKW - FUEL CELL SEPARATE POSITION PARALLEL ANODE CATHODE

INW - WATANABE M

NC - 002

OPD - 1996-03-07

ORD - 1997-09-19

PAW - (TANI) TANAKA KIKINZOKU KOGYO KK

- (WATA-I) WATANABE M

JI - Fuel cell - has separator which is positioned in parallel between anode and cathode

USAB- US5846668 The battery has an anode reaction gas supply groove and a cathode reaction gas supply groove formed in a thin metal film like conductive resin plate. A separator plate (6A,6C) is laminated between the anode and the cathode in a parallel manner.

- ADVANTAGE - Enables efficient cooling of anode or cathode. Aims at miniaturization and simplification of battery structure.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

【特許請求の範囲】

【請求項1】 カソード及びアノード反応ガス供給溝が金属薄板又は導電性樹脂薄板を介して同一平面上に並列したセパレータ板が各電極間に積層されていることを特徴とする燃料電池。

【請求項2】 アノード反応ガス供給溝はつづら折りの1本の連続溝から成り、かつこれを結ぶマニホールドは電極縁に付された外部マニホールド方式、又はセパレータ面を貫通している内部マニホールド方式であることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池。

【請求項3】 カソード反応ガス供給溝に反応ガスを供給するマニホールドは、相対する電極縁に付された外部マニホールド方式、又はセパレータ面を貫通している内部マニホールド方式であり、かつこのマニホールドの入り口側に接続されたカソード反応ガス供給溝と出口側に接続されたカソード反応ガス供給溝と請求項2に記載のアノード反応ガス供給溝により仕切られた不連続溝であることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池。

【請求項4】 カソード反応ガス供給溝とアノード反応ガス供給溝の断面積比が3～1である請求項1に記載の燃料電池。

【請求項5】 セパレータ板のうち金属から成るものについては、カソード反応ガス供給溝、アノード反応ガス供給溝の一方、又は両方の電極と接触する凸部が耐食性表面処理が施されていることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池。

【請求項6】 凸部耐食性表面処理剤の構成成分に、少なくとも白金、金、パラジウム、ロジウム、イリジウム、ルテニウムの中の1つを含むことを特徴とする請求項5に記載の燃料電池。

【請求項7】 カソード及びアノード反応ガス供給溝が金属薄板又は導電性樹脂薄板を介して同一平面上に並列し、カソード反応ガス供給溝とアノード反応ガス供給溝の断面積比が3～1であるセパレータ板が各電極間に積層されている燃料電池へ反応ガスを流すことにより、電極の冷却及びカソードの除湿を行う燃料電池の冷却・除湿方法。

【請求項8】 アノード及びカソード反応ガス供給溝が金属薄板又は導電性樹脂薄板を介して同一平面上に並列したセパレータ板が各電極間に積層されていることを特徴とする電解セル。

【請求項9】 カソード反応ガス供給溝はつづら折りの1本の連続溝から成り、かつこれを結ぶマニホールドは電極縁に付された外部マニホールド方式、又はセパレータ面を貫通している内部マニホールド方式であることを特徴とする請求項8に記載の電解セル。

【請求項10】 アノード反応ガス供給溝に反応ガスを供給するマニホールドは、相対する電極縁に付された外部マニホールド方式、又はセパレータ面を貫通している内部マニホールド方式であり、かつこのマニホールドの入

口側に接続されたカソード反応ガス供給溝と出口側に接続されたアノード反応ガス供給溝は請求項9に記載のカソード反応ガス供給溝により仕切られた不連続溝であることを特徴とする請求項8に記載の電解セル。

【請求項11】 アノード反応ガス供給溝とカソード反応ガス供給溝の断面積比が3～1である請求項8に記載の電解セル。

【請求項12】 セパレータ板のうち金属から成るものについては、アノード反応ガス供給溝、カソード反応ガス供給溝の一方、又は両方の電極と接触する凸部が耐食性表面処理が施されていることを特徴とする請求項8に記載の電解セル。

【請求項13】 凸部耐食性表面処理剤の構成成分に、少なくとも白金、金、パラジウム、ロジウム、イリジウム、ルテニウムの中の1つを含むことを特徴とする請求項12に記載の電解セル。

【請求項14】 アノード及びカソード反応ガス供給溝が金属薄板又は導電性樹脂薄板を介して同一平面上に並列し、アノード反応ガス供給溝とカソード反応ガス供給溝の断面積比が3～1であるセパレータ板が各電極間に積層されている電解セルへ反応ガスを流すことにより、電極の冷却及びカソードの除湿を行う電解セルの冷却・除湿方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、低温作動燃料電池、とりわけイオン交換膜を使用する燃料電池や電解セルの冷却及び除湿を効率的に行い得るセル構造に関するものである。

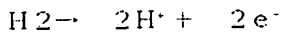
【0002】

【従来の技術】燃料電池は、水素や各種化石燃料を用いる高効率、無公害発電装置であることから、エネルギー問題、地球環境の公害問題に対処できる、“ポスト原子力”の発電装置として、社会的に大きな期待が寄せられている。火力代替発電用、ビルディングや工場単位でのオンサイト発電用、あるいは宇宙用など、用途に応じた各種燃料電池が開発されている。近年、炭酸ガスを中心とする温室効果や、 NO_x 、 SO_x 等による酸性雨が地球の将来を脅かす問題は、深刻な公害として認識されてきた。これら公害ガスの主要な排出源の一つが自動車等の内燃機関であることから、燃料電池を車載用内燃機関に代えて駆動するゼロタ電源として利用する気運が急速に高まりつつある。この場合、多くの付帯設備と同様、電池は可能な限り小型であることが望ましく、そのためには電池本体の出力密度、出力電流密度が高いことが必須である。この条件を満たす有力な燃料電池の候補として、イオン交換膜（以下PEMという）を用いた固体高分子電解質燃料電池（以下PEFCという）が注目されている。

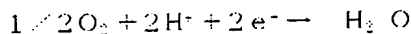
【0003】ここでPEFCの本体の基本構造と作用、

問題点について説明する。図7に示す如く、PEM1の両側に4A、4Cで示されるアノード及びカソードがホットプレスにより接合されることにより電池の基本が構成される。このアノード及びカソードは2Aまたは2Cで示される多孔質触媒層と3Aまたは3Cで示されるカーボンペーパーなどの導電性多孔質支持層からなる。電極反応は2A及び2C部の触媒表面で起こる。アノード反応ガス（ H_2 ）は反応ガス供給溝5Aから3Aを通して供給され、カソード反応ガス（ O_2 ）は反応ガス供給溝5Cから3Cを通して供給される。

2A中では：アノード反応



2C中では：カソード反応



の反応が起こり、電池全体ではこれらの反応のトータルとして、 $H_2 + \frac{1}{2}O_2 \rightarrow H_2O + Q$ （反応熱）の反応が起こる。この過程で、起電力が得られ、この電気エネルギーにより外部負荷8を電子が流れる際に電気的工作がなされる。この起電反応は可逆的でないため、その不可逆分（これを過電圧と呼び6で示す）が存在する。また電池には内部抵抗（R）が存在し、電流（I）を流すとIRの電圧ロスが生ずる。その結果、 $(\eta + I^2R) + \text{反応熱}$ の分だけは、電力にならず無駄な熱として電池内に蓄積する。従って、特に高電流密度運転が求められるPEFCにおいては、電池の冷却が第一の重要問題となる。

【0004】更にまた起電反応で、アノードにおいて生じた $2H^+$ はPEM中をカソードに移動するが、この際、1個の H^+ が平均2～2.5個の H_2O 分子を水和分子として同伴する。このため、 H_2 分子1個では4～5個の水分子がアノードからカソードに移動する。PEMは膜中に水分が必要量存在することにより、初めて十分な H^+ 導電性が現れる性質がある。従って、 H^+ に同伴移動することにより膜中に不足した水分は、絶えず外部（少なくともアノード側）から供給して補うことが必要となる。膜中をカソードに移動する分と、カソード反応で生じる分の全水分量は多量となり、もしこれが2C、3Cの細孔中に凝縮すれば、反応ガス（ O_2 ）の2C中の触媒表面までの供給を著しく阻害し、電池特性の低下を来す。従って、凝縮を起こさず水分を電池外に除去することがPEFC特有の第二番目の重要問題となる。

【0005】一般にガスセパレータ板（図7、図8中では記号6A、6Cで示されている）は、各々電極背面に燃料ガスと酸化剤ガスを均一に、かつ分離供給し、さらに反応によって生じた電気を効率よく集電する機能を有する必要がある。また、電池反応に付随する発熱が大きいため、運転条件を安定化させるためには、反応熱をガスセパレータを介して放熱させる必要がある。それ故、従来においては、両面にガス供給溝を形成したガスセパ

レータとPEM並びにアノード及びカソード複合体（単位セル）を順次複数積み重ねて多重セルとすると共に、該電池セルの周辺に冷却ジャケットを設けたり、数枚のセル間隔毎に冷却盤を挿入した構造が採用されている。また近年は、図8に示す如く、1セル毎にアノード、カソードの各背面に冷却水を流せるジャケット型の冷却構造が提案されている。しかしながら、前者においては、各セル毎または各セルの周辺部と内部を均一に冷却することは困難である。後者においては冷却は完全に行えるものの、前述のカソードにおける過剰生成水分の除去において重大な欠陥がある。すなわち、PEFCでは、カソード4Cの細孔内は水蒸気で殆んど飽和されており、これにセルの運転（露点）温度以下の冷却ジャケットを接触させると、その近傍に水が凝縮する。その結果、反応ガスの供給、生成水分の除去が阻害され、高電流密度の電池運転が不可能となる。従って、冷却と除湿のいずれも効率的に行える、ガスセパレータ構造を含む新しいセル構造と運転方法の提案が必須である。

【0006】また、従来の電池構造では、図8に示される如く、アノード、カソード、冷却ジャケットが厚さ方向に重ねられ、セルのコンパクト化を防いでいて、これが第三番目の問題となる。車載用PEFCとしては、このコンパクト化を実現する新しい電池構造の提案が求められる。

【0007】ところで、上記諸問題は、燃料電池の問題として述べてきた。他方、イオン交換膜を用いた電解セルでは良く知られる如く、燃料電池と同様の構造で、全く逆の反応、すなわち水の電解を行わせることができる。そこで上記燃料電池の記述でアノードをカソード、カソードをアノードと読み代えることにより、電解セルにおける同様の問題点の指摘となる。水の電解以外の電解反応でも同様の問題点が存在する。

【0008】

【本発明が解決しようとする課題】本発明は上記問題点を解決し、効率的冷却、効率的除湿が可能となり、装置自体がコンパクトな燃料電池及び電解セル並びにその冷却・除湿方法を提供する。

【0009】

【課題を解決するための手段】本発明はアノード及びカソード反応ガス供給溝が金属薄板又は導電性樹脂薄板を介して同一平面上に並列したセパレータ板が各電極間に積層されている燃料電池及び電解セルで、アノード反応ガス供給溝は、つづら折りの1本の連続溝から成り、カソード反応ガス供給溝は、前記アノード反応ガス供給溝により仕切られた不連続溝であることを特徴とする。またアノード反応ガス又はカソード反応ガスの供給マニホールドが電極縁にある外部マニホールド方式か又はセパレータを貫通する内部マニホールド方式とする。電解セルでは前記でアノードをカソード、カソードをアノードと読み代えるものである。さらに本発明は上記構造の燃

料電池及び電解セルへ反応ガスを流すことにより、電極の冷却及び除湿を行う、燃料電池及び電解セルの冷却・除湿方法である。

【0010】

【発明の実施の態様】まず燃料電池の場合について説明する。効率的な冷却を実現するため、本発明では発熱部位を直接、またはそれに最も近い部分を熱伝導性の良い材料を介して冷却している。ところで従来技術の問題点において指摘した如く、露点以下の冷却面との接触で冷却した場合、カソードとの接触部分を中心に水の結露を必ず生じてしまう。そこで本発明ではこの問題を回避するため冷却ジャケットを用いず、反応ガス（酸素又は空気）に冷却媒体（ガス）を兼ねさせることにした。多量の冷却ガスの導入により、水蒸気は水蒸気の含まれない冷却ガス中に速やかに拡散し、この冷却ガスと共に速やかに電池外に除去されるため、カソード細孔内の水蒸気の飽和度は下がり露点がより低下するため、冷却しても結露が生じなくなる。更にまた、カソード反応ガス通路を図3-(c)又は図6-(c)に示すように不連続にしたので、反応ガスは反応ガス供給溝5Cから反応ガス供給溝5C'に通じ抜けるため、セパレータ板と接するガス拡散電極4Cの導電性多孔質支持層3C中を通過し、この部位への反応ガス供給、除湿が効率的に行われる。

【0011】またアノードに比べカソードの過電圧が大きいため発熱はカソード部位がより大きくなる点や、除湿が必要なのはカソード面のみである点を考慮して、本発明ではカソード反応ガスの供給量をアノード反応ガスの供給量より大きくできる構造としている。具体的にはカソード反応ガスの供給溝断面積をアノード反応ガスの供給溝断面積より大きくし、多量の冷却ガスをカソード反応ガス供給溝に送入できるよう、カソード反応ガス用には外部マニホールド方式を採用した。このような構造をすることにより、冷却ガスとしてのカソード反応ガスを大量に流すことができ、特に冷却ガスとして空気を用いた場合には、効率的な冷却・除湿効果と併せ、カソード特性の向上も図れ、またアノード反応ガスの供給量を必要最小限におさえることができるという種々の付加的な効果も生じる。なお、カソード反応ガス用マニホールドを内部マニホールド式とする場合、図2及び図4の12C'、12C''のように開口部を大きくとれば、外部マニホールド式と同等の効果が得られる。

【0012】また本発明はセパレータ板に金属薄板や導電性樹脂薄板を用いているが、導電性樹脂薄板は金属又はカーボンと樹脂とのコンポジットを射出成形あるいは削り出しにより作成することができる。これによりカソード冷却ガスの冷却効果がアノードにも速やかに伝達されるようにすることができ、また金属薄板の場合は絞り一体加工することによりアノード及びカソード反応ガス供給溝が成形でき、加工が簡便で有るという効果もある。

さらにアノード供給溝により仕切られたカソード反応ガス供給溝が同一平面上に並列するため、アノード及びカソード反応ガス供給溝の占める厚みが従来に比べて半減し、また冷却ジャケットも不要なため、装置的に非常にコンパクトなものが得られる。なお上記燃料電池の説明は、アノードをカソードへ、またカソードをアノードへと読み代えることにより、電解セルの説明として用いることができる。

【0013】

【実施例】以下に本発明の詳細を図面をもとに説明する。

【0014】

【実施例1】本発明のアノードマニホールドが内部マニホールド方式、カソードマニホールドが外部マニホールド方式の燃料電池の実施例を図1及び図3にて説明する。図1は本発明のセパレータ板を用いたときのセル構成を示す。セパレータ板、6A（アノード側）、6C（カソード側）は厚さ0.3mmの銅板を絞り加工により作成した。アノード反応ガス供給溝5A及びカソード反応ガス供給溝5C、5C'は図3-(a)、図3-(c)に示す如き配置を有し、同一平面内に交互に平行して形成させた。これを図3のA-Bで切断した断面図を図3-(b)（A-B）に示す。ここで示すごとく、カソード反応ガス供給溝5C及び5C'はアノード反応ガス供給溝5Aと交互に反対側に存在する。またセパレータ板には図3中で12A'、12A''で示されるアノード内部マニホールド用の穴が開けられている。

【0015】このセパレータ板のアノードマニホールド側端面に図1に示されるアノード面用バックアップシート11Aを貼り合わせ、さらにその間にガス拡散電極4Aをそのガス拡散層（導電性多孔質支持層）3Aがセパレータ板の方を向くようにセットする。またセパレータ板のカソードマニホールド側端面には図1に示されるカソード面用のバックアップシート11Cを貼り合わせ、さらにガス拡散電極4Cをそのガス拡散層（導電性多孔質支持層）3Cがセパレータ板の方を向くようにセットする。なおカソードマニホールド側のガス拡散電極4Aの端部及びアノードマニホールド側のガス拡散電極4Cの端部は10A、10Cでそれぞれシールする。ガス拡散電極の反応層（多孔質触媒層）2Aと反応層（多孔質触媒層）2Cの間にイオン交換膜1を入れ積層することにより燃料電池を作成した。

【0016】図3に示すカソード反応ガス供給溝5C及び5C'の断面積とアノード反応ガス供給溝5Aの断面積の比を変えることは、溝巾比WC/WAを変えることにより可能である。理論的な反応ガス利用量はカソードガス/アノードガス=1/2であるので、化学量論比のみの観点からはWC/WA>0.5の必要はない。しかし、冷却・除湿の観点からはカソード反応ガス供給溝の断面積は大きい程望ましいが、カソード極に於ける集電

部7Cの微小化による集電能の低下、アノード極での集電部7Aの遮蔽によるガス供給能の阻害増大を考慮し、カソード反応ガス供給溝の断面積をアノード反応ガス供給溝の断面積と比べ、カソードガスが純酸素の場合、約1倍、空気の場合、約3倍程度とした。一方、このカソード反応ガス供給溝に十分なガス供給を行うため、図3、図6に示すごとくカソード反応ガス供給用マニホール12C'及びカソード反応ガス排出用マニホール12C''の大きさをアノード反応ガス供給用マニホール12A'及びアノード反応ガス排出用マニホール12A''より化学量論比より大きくしてあり、その比率は望ましくは1〜3倍とする。

【0017】上記のように燃料電池を組み立てることにより、それぞれの反応ガスマニホール入口から送られたガスは、ガス供給溝を経由してマニホール出口へと導かれ、排出される。このとき、カソード反応ガスの流路が大きくなってあるため、カソード反応ガスを冷却ガスとして十分送り込むことが可能となり、電極の冷却及び除湿が申し分なく達成された。

【0018】なお本実施例ではアノードマニホールの入口側と出口側の位置を図1、図3に示す如く中心からずらしているが、これは反応ガスのマニホール内での滞留部分の低減を図るための工夫である。

【0019】なお、図面ではガス供給溝形を便宜上、矩形で表示したが、これに制約するものでない。実際の加工に於いては台形とした。

【0020】

【実施例2】実施例1のアノードマニホールはシール性の点で図5、図6に示す本実施例2より優れるが、本例はより多量のアノードガス供給を可能とする外部マニホール方式を採用した。カソードマニホール構造は同一とした。マニホール開口部を実施例1より大きく取り得た。他の性能特徴は実施例1に述べたものとほとんど同等であった。

【0021】なお、セパレータ板のうち、金属から成るものについては、カソード反応ガス供給溝、アノード反応ガス供給溝供給溝の一方又は両方の電極と接触する凸部が耐食性表面処理が施されているのが望ましく、特に白金、金、パラジウム、イリジウム、ルテニウムの中の1つを含むことが好ましい。

【0022】

【発明の効果】上記のとおり、本発明の燃料電池は、ガスを大量に流せる構造を有するマニホール及びカソード反応ガス供給溝を有し、かつ、薄い良熱伝導性の金属板又は導電性樹脂薄板を介してアノードも冷却できるセパレータ構造を有するため、主要な発熱部であるカソード触媒層部分を効率的に冷却できるのみならずアノードも効率的に冷却でき、しかも、カソード内に生ずる多量の水分を結露させることなく効率的に電池外に除去でき、さらに反応ガス供給溝を同一面内に納めたため、ア

ノード、カソード反応ガス供給溝を占める厚みが半減して、コンパクト化、簡易化が図れ、かつ低コスト化も図れるものである。

【0023】また同様に電解セルにおいてもアノード及びカソードを効率的に冷却でき、アノード内に結露を生じさせることなく、燃料電池と同様の効果が得られるものである。

【図面の簡単な説明】

【図1】実施例1におけるセパレータ板を用いた電池構成斜視図である。（上部がアノード側面、下部がカソード側面）

【図2】実施例1におけるセパレータ板を用いた電池構成斜視図である。（上部がアノード側面、下部がカソード側面）

【図3】実施例1におけるセパレータ板の模式図である。（(a)：アノード側面、(b)：A-B切断面、(c)：カソード側面）

【図4】実施例1におけるセパレータ板の模式図である。（(a)：アノード側面、(b)：A-B切断面、(c)：カソード側面）

【図5】実施例2におけるセパレータ板を用いた電池構成の斜視図である。（上部がカソード側面、下部がアノード側面）

【図6】実施例2におけるセパレータ板の模式図。（(a)：アノード側面、(b)：A-B切断面、(c)：カソード側面）

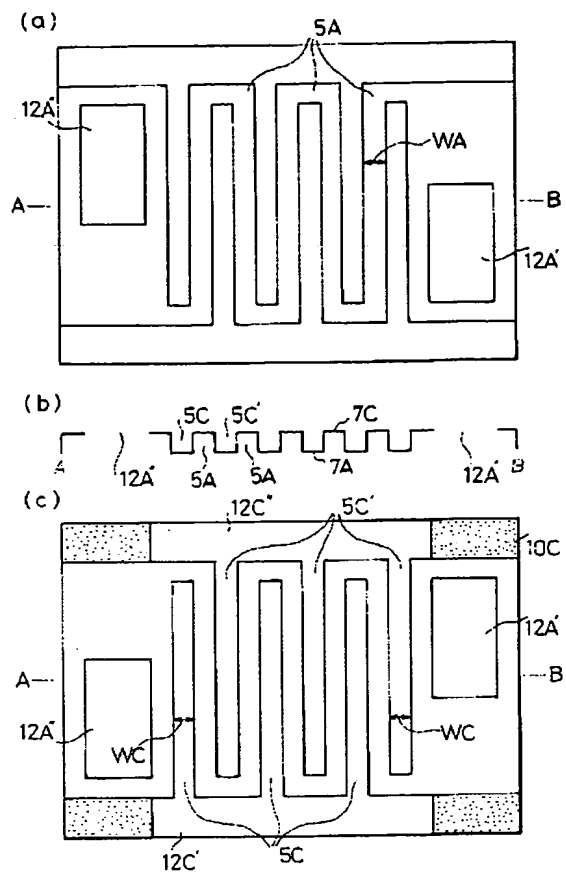
【図7】従来型の高分子固体電解質型燃料電池の原理図である。

【図8】従来型燃料電池水冷却構造の説明図である。

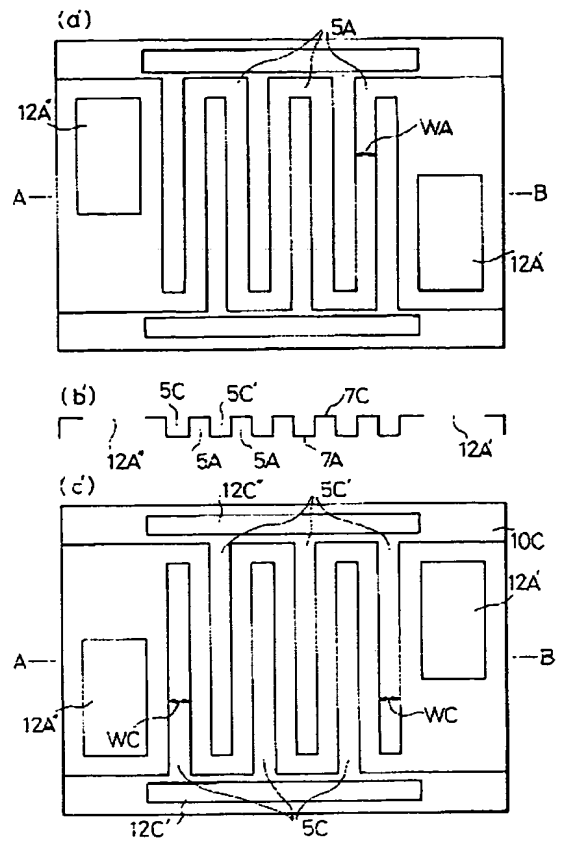
【符号の説明】

- 1 イオン交換膜（PEM）
- 2A 多孔質触媒層（アノード側）
- 2C 多孔質触媒層（カソード側）
- 3A 導電性多孔質支持層（アノード側）
- 3C 導電性多孔質支持層（カソード側）
- 4A ガス拡散電極（アノード極）
- 4C ガス拡散電極（カソード極）
- 5A 反応ガス供給溝（アノードガス用）
- 5C 反応ガス供給溝（カソードガス入口側用）
- 5C' 反応ガス供給溝（カソードガス出口側用）
- 6A セパレータ板（アノード側）
- 6C セパレータ板（カソード側）
- 7A 集電部（アノード極）
- 7C 集電部（カソード極）
- 8 負荷
- 9 冷却ジャケット
- 10A 端部シール（アノード端面用）
- 10C 端部シール（カソード端面用）
- 11A 電極バックアップシート（アノード側）
- 11C 電極バックアップシート（カソード側）

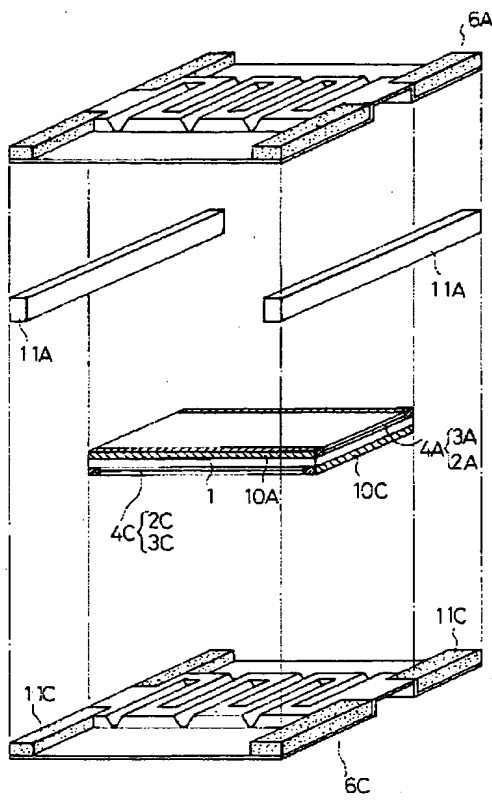
【図3】



【図4】



【図5】



【図6】

